



技術解説

# レーザーによる同位体分離

井澤靖和\*

## 1. まえがき

レーザーによる同位体分離は、同位体間に現れる吸収スペクトルの差(同位体シフト)を利用して、単色性の良いレーザー光により一方の同位体のみを選択的に励起して分離するものである。可変波長レーザーの進歩とともに1970年代の初めより種々の原子や分子を対象としてレーザー同位体分離の基礎研究が勢力的に行われ、数多くの実験結果や理論的成果が報告された。その応用のなかで最も重要と考えられているのはレーザーによるウラン濃縮<sup>1)</sup>である。

良く知られているように軽水炉燃料には<sup>235</sup>Uを自然存在比の0.7%から3%にまで高めた濃縮ウランが使用されている。レーザー同位体分離法はガス拡散法や遠心分離法など同位体間の質量差を利用する従来からの統計的方法に比べて、濃縮係数が高く、巨大なカスケードを必要としないため、濃縮プラントの構成がはるかに簡単となり、濃縮コストの低減が可能であると期待を集めてきた。

1974年米国ローレンスリバモア研究所がレーザーによるウラン濃縮の実験結果<sup>2)</sup>を発表して以来、米国や仏国で大規模な実用化研究が行われてきた。米国ではローレンスリバモア研究所が金属ウランを用いる原子法<sup>3)</sup>を、ロスアラモス研究所がUF<sub>6</sub>を用いる分子法<sup>4)</sup>について研究を進めた。我が国では大阪大学が1975年よりウラン濃縮の研究に着手し<sup>5)</sup>、1982年一連の成果が電気学会論文誌に発表された<sup>6)</sup>。その後1976~79年にかけて日本原子力研究所(原子法)<sup>1)</sup>および理化学研究所(分子法)<sup>1)</sup>でも研究が開始された。

1985年米国は『遠心分離法の計画を中止し、次期ウラン濃縮法として原子レーザー法を採用する』ことを決定した。この発表は世界中に多大の影響を与え、我が国でも技術研究組合が組織され、産官学の協力の下に研究開発を推進することになった。ここではレーザー同位体分離法の原理とウラン濃縮を中心とした研究開発の現状について紹介する。

## 2. レーザー同位体分離の原理

レーザーによる同位体分離が可能であるためには、

- ① 分離しようとする同位体原子や分子の吸収スペクトルに一致する、可変波長で単色性のよいレーザーがあること。
  - ② 特定の同位体原子や分子を選択的に励起し得ること。すなわち、同位体シフトがレーザーの線幅より大きいこと。
  - ③ 選択励起された原子・分子のみに作用し、非励起のものとは作用しない物理的、化学的な過程があること。
  - ④ 励起された原子・分子と非励起原子・分子の間のエネルギー交換など選択性の損失を引き起こす過程がないこと、またはあっても③の過程にくらべてゆっくりしていること。
- 等の条件を満たす必要がある。①および②の条件は波長可変で単色性のよい色素レーザーなどにより容易に実現できる。③の過程として光電離や光解離などが一般的に用いられる。④の選択性の損失を少なくするため低圧の気体や原子、分子ビームが用いられる。

### 2.1 同位体シフト

原子の同位体シフトには質量効果、体積効果、核スピンの効果などがある。質量効果による同位体シフト $\Delta\nu$ は電子の質量を $m$ 、同位体の原

\*井澤靖和(Yasukazu IZAWA), 大阪大学レーザー核融合研究センター, 教授, 工学博士, レーザー工学

子核の質量を  $M_1, M_2$  として

$$\Delta\nu/\nu = m \cdot \Delta M / \sqrt{M_1 M_2}$$

で表される。ここに、 $\nu$  は遷移周波数、 $\Delta M = M_1 - M_2$  である。このシフトは水素原子に対して最大で、質量の増加とともに減少する。一方、ウランのように質量の大きい原子では原子核の電荷分布の違いによる同位体シフトがある。これは体積シフトと呼ばれ、原子核との相互作用の大きい  $s$  電子が関与するスペクトルに大きく現れる。原子核の中性子数と同位体シフトを図1に示す。ウラン原子の場合シフト量は  $0.3\text{cm}^{-1}$  程度で、質量効果の100倍以上大きい。

分子の場合、同位体シフトが最も顕著に現れるのは振動スペクトルである。2原子分子の場合、調和振動子を考えると同位体シフトは

$$\Delta\nu = \nu \cdot \Delta\mu / \mu$$

で表される。ここに、 $\mu$  は換算質量、 $\Delta\mu$  は同位体による質量差である。この値は原子の場合よりはるかに大きい。

## 2.2 分離の方法

### 2.2.1 光電離法

原子に対して最も一般的な方法で、図2に示すように一方の同位体原子  $A_1$  のみをレーザー光

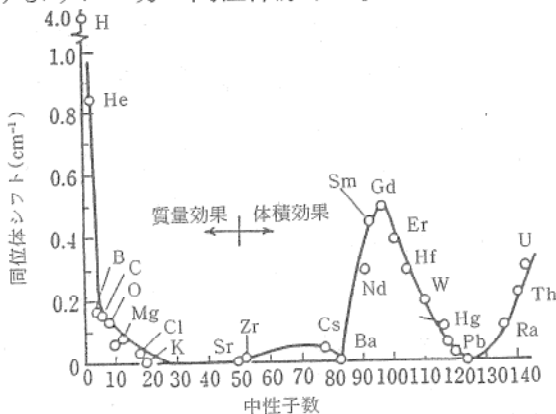


図1 原子の中性子数の同位体シフト

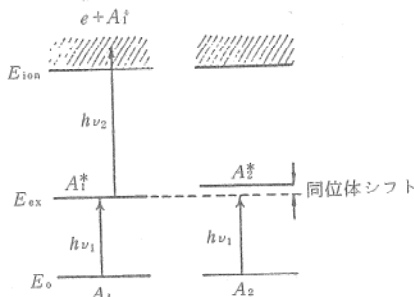
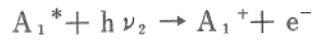
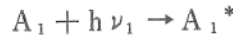


図2 2段階光電離法

$h\nu_1$  で選択励起し、第2(第3)のレーザー光  $h\nu_2$  ( $h\nu_3$ ) により励起状態にある原子のみを電離する。すなわち

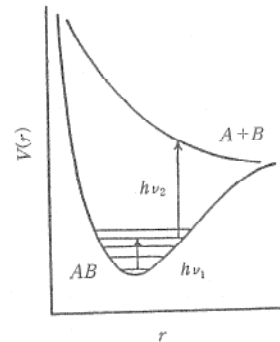


生成されたイオンは電界により回収する。

励起の断面積に較べて電離の断面積が小さく、効率よく電離を引き起こすためには、励起用のレーザー光に較べて電離用のレーザー光強度を充分大きくしなければならない。また、



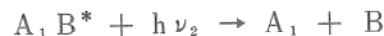
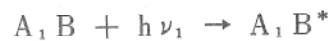
のような電荷交換衝突があると濃縮係数の低下を招くため、作業物質の圧力をあまり高くできない。



### 2.2.2 光解離法

図3 2段階光解離法

選択励起した同位体分子を解離させて分離する方法で、一般に



と書ける。ウランの場合には図3に示すように、選択励起には振動準位に共鳴する赤外レーザー光が用いられる。一般に分子の解離を伴う吸収スペクトルは、遷移上準位が反発ポテンシャルであるため、線幅の広い連続スペクトルとなっており、長波長側の立ち上がりは非常にゆるやかである。長波長側の線幅を  $\Delta\nu_c$  とすると  $h\nu_1 > \Delta\nu_c$  でなければ大きい濃縮係数は得られない。

### 2.2.3 赤外多光子解離法

赤外領域の強力なレーザー光を多原子分子に照射すると分子は多数個の光子を同時に吸収し、高い振動励起状態を経て解離する。この過程は4原子分子以上の多原子分子に一般的で、同位体選択性がある。

分子の結合力は非調和ポテンシャルであり、

振動準位の間隔は上にいくほど小さくなるため、基底状態から最初の励起状態へ共鳴する光は、上の準位への遷移に対して非共鳴となるはずであるが、回転準位の影響や強いレーザー光による吸収線のパワー拡がりによって共鳴的に吸収可能となり、ある程度高い振動状態にまで励起される。それ以上高いエネルギー状態では状態密度が大きく、準連続状態となっているため、どんな波長の光でも吸収してついには解離に至る。この様子を図4に示す。多光子解離を引き起こすにはレーザー光強度にしきい値が存在し、 $10^7 \sim 10^9 \text{ W/cm}^2$ 程度である。

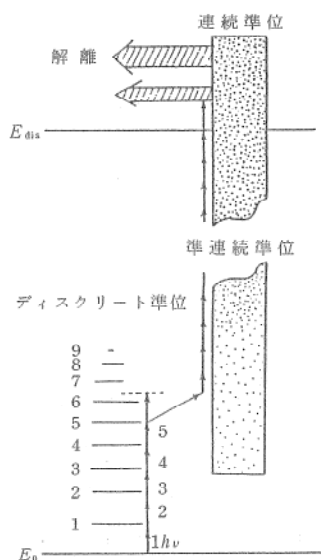


図4 多光子解離法

準連続状態ではレーザー光波長は任意でよい。ため、 $\lambda_1, \lambda_2$  の2波長レーザーを用い、 $\lambda_1$  により選択的に準連続状態まで励起し、非共鳴の $\lambda_2$  により解離に導く2波長多光子解離法もある。このとき  $\lambda_1$  のレーザー光は比較的弱い光でもよい。

### 3. 原子法レーザーウラン濃縮

#### 3.1 基礎実験

ウラン原子は可視域に多くの吸収スペクトルをもっており、同位体シフトも比較的大きいので、色素レーザーを用いて $^{235}\text{U}$ を容易に選択励起できる。金属ウランを加熱して十分な蒸気密度を得るには2500K程度の高温が必要であり、一般に電子ビーム加熱法が用いられる。

原子法レーザーウラン濃縮の原理実証は2段

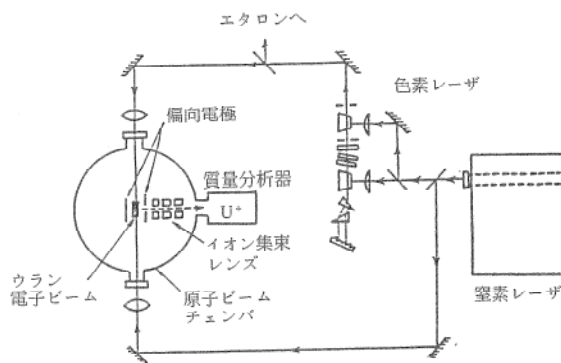


図5 2段階電離法によるウラン濃縮実験装置

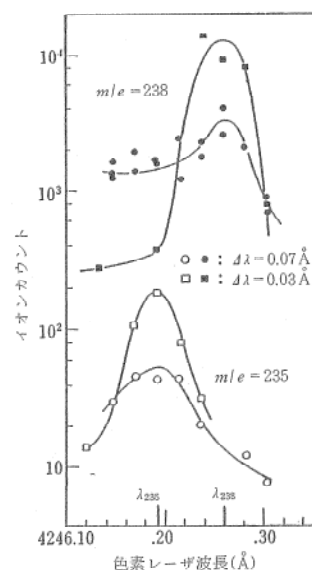


図6 色素レーザー波長と生成 $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ イオン数

階光電離法を用いて行われた<sup>2,5)</sup> 筆者らの実験装置を図5に示す。色素レーザー光 (426.2nm, 選択励起用) と窒素レーザー光 (337nm, 電離用) をウラン原子ビームに垂直に入射し、生成されたウランイオンを4重極マスフィルターで質量分析した。色素レーザーの波長を変化させたときのイオンスペクトルを図6に示す。レーザー波長を $^{235}\text{U}$ の吸収線に一致させたとき、色素レーザーの線幅0.03Åで濃縮係数50が得られている。

ウラン蒸気密度と濃縮係数の関係を図7に示す<sup>6)</sup> 密度の増大に伴い濃縮係数の低下が見られる。これは選択的に電離された $^{235}\text{U}$ イオンが、電界による回収過程で中性の $^{238}\text{U}$ 原子と衝突し、電荷交換を引き起こすためと考えられている。

#### 3.2 濃縮プラント

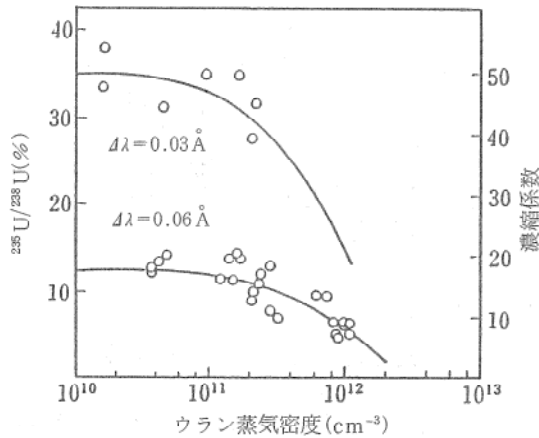


図7 ウラン蒸気密度と濃縮係数

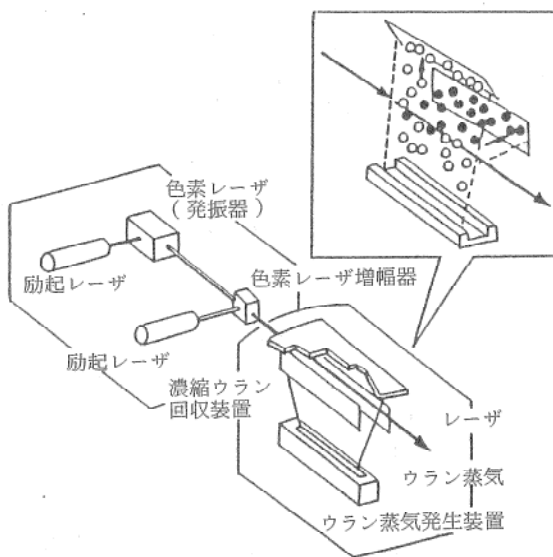


図8 原子法ウラン濃縮プラント概念図

原子法によるレーザーウラン濃縮装置の概念図を図8に示す。金属ウランを長尺のルツポに入れ、電子ビームを線状に収束して加熱し、ウラン蒸気を発生させる。スリットを通してウラン蒸気ビームとし、これに選択励起、電離用の

レーザー光を照射して<sup>235</sup>Uを電離する。生成した<sup>235</sup>Uイオンは電界や磁界により電極上に回収する。未反応のウラン蒸気も回収板上に凝集させて回収する。

選択励起、電離用として開発が進められているのは、銅蒸気レーザー励起の色素レーザーである。銅蒸気レーザーが最も有望とされているのは、可視域で発振し、高繰り返し動作が可能で、効率が高いことによる。ちなみに商業プラントでは5~10kHzの繰り返しが必要とされている。

銅蒸気レーザーは発振波長が510nmと578nmであるため、得られる色素レーザーの波長は600nm付近となる。この光子エネルギーは約2eVであり、ウラン原子の電離エネルギーは6.2eVであるから、電離には3光子が必要となる。このため第1のレーザーで選択励起し、第2、第3のレーザーで電離に導く、3段階電離法が用いられることになる。

### 3.3 諸外国の現状

米国ではローレンスリバモア国立研究所を中心に、1970年代より大規模の研究が行われ、現在商業プラントの1モジュールに相当する工業実証装置 (Full Scale Engineering Demonstration Facility, FSEDF) の建設を進めている。この装置は1000tonSWU/年の規模で、1991年までにこれを5000tonSWU/年のプラントに増設、1995年には12000tonSWU/年に増強し、1996年よりフル稼働に入る計画である。

FSEDFの構成を表1に示す。レーザー部は出力150Wの3段階増幅付き銅蒸気レーザーと、

表1 FSEDFの構成

銅蒸気レーザー	発振器・パルスストレッチ・増幅器3台構成、ビーム径70mm, 出力150W/5kHz, 60ビームシステム。
色素レーザー	発振器・増幅器2台構成 (バックアップ発振器付) 色素: ローダミン, 溶媒: エタノール, 4ビームシステム
分離チャンバ	直径16フィート, 長さ80フィート, 光学部品設置部, バルブ部 セパレータ部からなる。電子ビーム加熱, 長さ2mのガン3台 6台の油拡散ポンプ, 2台のクライオポンプ付。

2段増幅、4波長色素レーザーより構成されている。分離チェンバーは、図9に示すように、直径16フィート、長さ60フィートの大きさで、中央部に長さ2m、3列の蒸気発生部があり、両端はレーザー光をウラン蒸気中で往復させるための光学系設置部になっている。

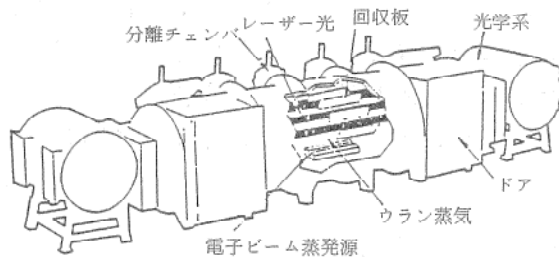


図9 FSDFの分離チェンバ

米国以外では仏国サクレ研究所で出力100W級の銅蒸気レーザーの開発が進められている。またこれと並行してウラン原子の分光学的研究や、ウラン蒸気中でのレーザー光長距離伝播特性の研究など詳細な研究が進行中である。中国やソ連においても相当規模の研究が行われているようである。

### 3.4 我が国の現状

我が国では原子力研究所が約100 $\mu$ gの低濃縮ウランの回収に成功しているが、レーザー、ウラン蒸気発生、濃縮および劣化ウラン回収などの技術開発ならびにウラン原子に関する基礎データの集積とも、他国に比べて遅れている。

1987年、電力会社を中心として技術研究組合が設立され、レーザーおよび分離チェンバーなどプラント構成機器の技術開発を行うとともに、年間ton SWU規模のシステムを試作して、性

能試験を行うことになっている。このような機器開発とならんで、ウラン原子の分光学的研究、レーザー光とウラン原子の相互作用、ウランビーム中での衝突過程など、濃縮システムの動作パラメータ決定の基礎となるデータベースの整備や、レーザーによる選択励起・電離過程、ウランイオンの回収過程をモデル化し、最適動作条件を解析するシミュレーションコード開発が重要で、大阪大学、原子力研究所、レーザー技術総合研究所で研究が進められている。

### 3.5 経済性の評価

原子レーザー法のコスト評価の一例を表2に示す。遠心分離法やガス拡散法の統計的方法が多段のカスケードを必要とするのに対し、レーザー法では1段で所要の濃縮が得られるため、設備費が低くてすむのが特徴である。一方、ウラン蒸気の発生と回収に大電力が必要なため、プラントの運転に必要な電力は遠心分離法とほぼ同じと評価されている。レーザー部と蒸気発生、回収部の消費電力の比率は1:10程度であり、電子ビーム加熱法に代わる消費電力の少ないウラン蒸気発生法が開発されれば、更に経済性は向上すると予想される。

## 4. 分子法レーザーウラン濃縮

分子法では作業物質として6フッ化ウラン(UF<sub>6</sub>)の使用を前提としている。これはUF<sub>6</sub>がウラン化合物の中で最も蒸気圧が高く、化学的に安定であり、取り扱いが容易な化合物であるからである。

### 4.1 UF<sub>6</sub>の吸収スペクトル

表2 ウラン濃縮法の経済性評価

	設備費	運転費	消費電力
レーザー法 (原子法)	\$100~150 / SWU年	小	~100kWh / SWU (\$3~5 / SWU)
遠心分離法	\$400~500 / SWU年	小	~100kWh / SWU (\$3~5 / SWU)
ガス拡散法	\$300~500 / SWU年	大	2,400kWh / SWU (\$40~80 / SWU)

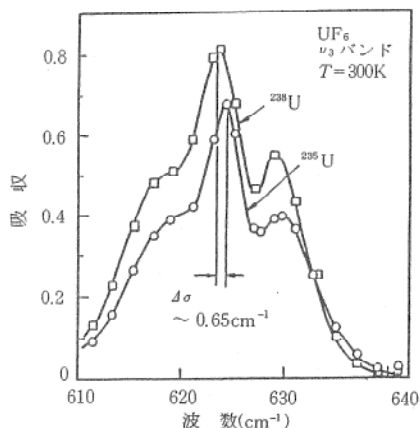


図10 UF<sub>6</sub> ν<sub>3</sub> バンドの吸収スペクトル(室温)

UF<sub>6</sub>は赤外域に何本かの吸収バンドを有しているが、吸収断面積の点からも、同位体シフトの点からも、16 μm 付近の ν<sub>3</sub> バンドを利用して選択励起するのが最も妥当である。

室温での ν<sub>3</sub> バンドの吸収スペクトルは図10に示すように、ホットバンドの影響が大きく現れ、バンド幅に比べて同位体シフトははるかに小さい。このため、超音速ノズルを用いて断熱膨張させ、50K程度まで冷却する方法が採られる。この方法で、通常分光光度計により測定された吸収スペクトルを図11に示す。冷却により、バンド幅が同位体シフトより狭くなり、<sup>235</sup>UF<sub>6</sub> と <sup>238</sup>UF<sub>6</sub> のスペクトルが完全に分離しているのが分かる。可変波長の半導体レーザーを用いて、さらに高分解の吸収スペクトルも測定され<sup>9)</sup>、同位体シフトが0.6cm<sup>-1</sup>であることも確かめられている。

4.2 2段階光解離法

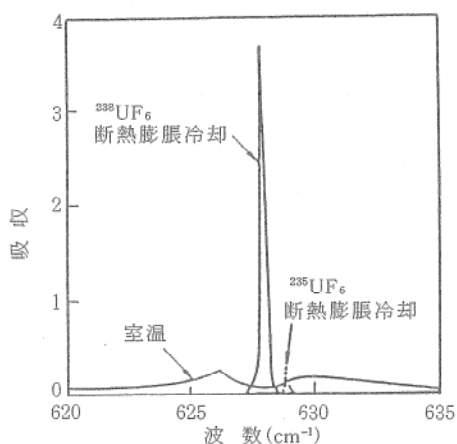


図11 UF<sub>6</sub> ν<sub>3</sub> バンドの吸収スペクトル(50K)

UF<sub>6</sub>を用いた<sup>235</sup>Uの分離は、最初、16 μmの赤外光で選択励起し、紫外光で解離する2段階光解離方式が米国ロスアラモス研究所や仏国サクレ研究所で研究された。この方式では赤外レーザー光で励起されない<sup>238</sup>UF<sub>6</sub>も紫外レーザー光のみで解離し、濃縮係数は1より少し大きな値しか得られなかった。低温の極限においても、この値はたかだか2程度と言われているが、3%の濃縮ウランを得るためにはカスケードが必要で、このため米国では開発が中止された。

4.3 多光子解離法

16 μm帯での高出力レーザーの出現とともに、赤外多光子解離法の研究が進められている。波長10 μmのCO<sub>2</sub>レーザー光をラマン散乱過程により16 μm光に変換するパラ水素ラマンレーザーが用いられる。通常のTEACO<sub>2</sub>レーザーは発振波長が連続可変ではないので、ラマンレーザーの波長を<sup>235</sup>UF<sub>6</sub>の ν<sub>3</sub> モードに完全に同調することは出来ない。このため、圧力5~10気圧で動作する高気圧CO<sub>2</sub>レーザーをラマンレーザーの励起源として用いる。CO<sub>2</sub>のガス圧力を高くすると、衝突の効果によりスペクトル幅が拡がり、振動・回転準位に基づくレーザー発振線の穴がうめられ、広いスペクトル範囲で発振波長を連続的に変えられる。

多光子解離法によるウラン濃縮装置の概念図を図12に示す。UF<sub>6</sub>をバッファガスと混合し、超音速ノズルを通して真空中へ噴出させ、50-100Kまで冷却する。ここにレーザー光を照射して、<sup>235</sup>UF<sub>6</sub>を解離させ、粉末状に析出する<sup>235</sup>UF<sub>6</sub>を回収する。ラマンレーザーの波長を<sup>235</sup>UF<sub>6</sub>の ν<sub>3</sub> バンドに同調し、このレーザーのみでUF<sub>6</sub>を解離に導くほどの出力を得るには、レーザーのコストが高くなる。このため通常の方法で得られる非同調のラマンレーザーを併用して2波長多光子解離法が採用されることになる。

4.4 分子法の現状

米国ではエクソン社で基礎研究が行われた。16 μmの2波長ラマンレーザー光(励起用: 613

～629cm<sup>-1</sup>，解離用：596.8cm<sup>-1</sup>)と室温のUF<sub>6</sub>分子ビームを用いた照射実験で得られた濃縮係数の最大値は1.2であった。

我が国では理化学研究所が科学実証研究を実施し，世界で初めて4を越える濃縮係数を実現した。現在動燃事業団と協力して高繰り返しのレーザーや分離器などの構成機器の技術開発を開始している。

分子法は原子法に比べて開発は遅れているものの，取り扱い技術が確立したUF<sub>6</sub>を作業物質として使用できる利点があり，高い潜在能力を有すると考えられる。

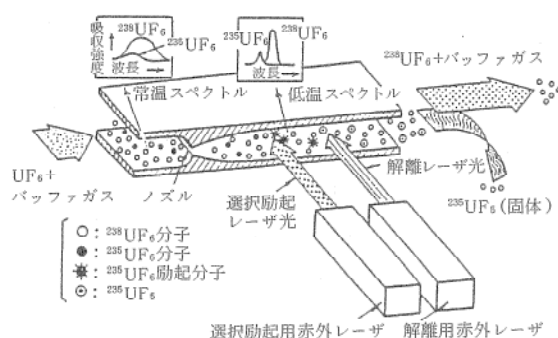


図12 分子法レーザーウラン濃縮の概念図

## 5. む す び

レーザー同位体分離法の原理とウラン濃縮技術開発の現状を紹介した。レーザーを利用した同位体分離技術は原子炉使用済燃料の再処理，重水素・三重水素の分離，中性子吸収断面積の大きい<sup>157</sup>Gdや中性子放射化の小さい<sup>56,57</sup>Fe, <sup>61</sup>Ni, <sup>96,97</sup>Moなどの分離，半導体材料としての<sup>29,30</sup>Siの分離，高純度金属の精練など幅広い応用が期待されており，今後ますます重要性を増すものと考えられる。

## 参 考 文 献

- 1) レーザー研究, 14巻6号(レーザーウラン濃縮特集号) (1986).
- 2) S.A. Tuccio et al, IEEE J. Quantum Electron. QE-10, 790 (1974).
- 3) S.A. Tuccio et al, ibid QE-11, 1010 (1975).
- 4) R. Jensen et al, Laser Focus 5, 51 (1976-5)
- 5) 仁木 他, 電学論説 C102 45 (昭57).
- 6) H. Niki et al, Technol. Rep. Osaka Univ. 28 465 (1978).
- 7) Business Development Opportunities in Laser Applications: Isotope Separation: LLL-TB-068 (1985).
- 8) M. Takami et al, Japan. J. Appl. Phys. 23, L88 (1984).